

97

## ULTRAFINE POWDER OF SPHERICAL SILICA, METHOD OF MANUFACTURING THE SAME AND USE THEREOF

**Veröffentlichungsnummer** JP2002121323 (A)

**Veröffentlichungsdatum:** 2002-04-23

**Erfinder:** YOSHIDA AKIO; ICHIKAWA KOKI; WATANABE SHOJIRO

**Anmelder:** DENKI KAGAKU KOGYO KK

**Klassifikation:**

- **Internationale:** **C01B33/18; C08K7/18; C08L83/04; C01B33/00; C08K7/00; C08L83/00;**  
(IPC1-7); C08K7/18; C01B33/18; C08L83/04

- **Europäische:**

**Anmeldenummer:** JP20000310034 20001011

**Prioritätsnummer(n):** JP20000310034 20001011

### Zusammenfassung von **JP 2002121323 (A)**

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide ultrafine powders of spherical silica suitable for various fillers for resins, particularly for silicone rubber, and a method of manufacturing the same.

**SOLUTION:** There are provided an ultrafine powder of spherical silica, which is a silica powder prepared from a starting material of silica and/or silicon, has a specific surface area of 30 m<sup>2</sup>/g or above, has 1% or less of coarse particles of 5 µm or larger, has 1,000 ppm or less of carbon impurities, has a sphericity of 0.9 or more, has 3/nm<sup>2</sup> or less of a surface silanol group, and forms substantially no structural construction, a method of manufacturing the ultrafine powder of spherical silica comprising heating a silica and/or silicon raw material to 2,200 deg.C or above in an electric furnace, rapidly cooling and oxidizing the gas thus formed,; and recovering the resultant powder at a temperature of 200 deg.C or above, and a silicone rubber filler comprising the ultrafine powder of spherical silica.

Daten sind von der **esp@cenet** Datenbank verfügbar — Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

## (12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-121323

(P2002-121323A)

(43) 公開日 平成14年4月23日 (2002. 4. 23)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テ-マコード* (参考)
C 0 8 K 7/18		C 0 8 K 7/18	4 G 0 7 2
C 0 1 B 33/18		C 0 1 B 33/18	Z 4 J 0 0 2
C 0 8 L 83/04		C 0 8 L 83/04	

審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 6 頁)

(21) 出願番号	特願2000-310034(P2000-310034)	(71) 出願人	000003296 電気化学工業株式会社 東京都千代田区有楽町1丁目4番1号
(22) 出願日	平成12年10月11日 (2000. 10. 11)	(72) 発明者	吉田 昭夫 福岡県大牟田市新開町1 電気化学工業株式会社大牟田工場内
		(72) 発明者	市川 恒希 福岡県大牟田市新開町1 電気化学工業株式会社大牟田工場内
		(72) 発明者	渡辺 祥二郎 福岡県大牟田市新開町1 電気化学工業株式会社大牟田工場内
		最終頁に続く	

(54) 【発明の名称】 真球状シリカ超微粉、その製造方法及び用途

(57) 【要約】

【課題】各種樹脂充填材、特にシリコーンゴム充填材に好適な真球状シリカ超微粉及びその製造方法を提供すること。

【解決手段】シリカ及び／又はシリコンからなる出発原料で得られたシリカ粉末であって、比表面積が $30\text{ m}^2/\text{g}$ 以上、 $5\text{ }\mu\text{m}$ 以上の粗大粒子が1%以下、カーボン不純物が $1000\text{ ppm}$ 以下、球形度が0.9以上、表面シラノール基が $3\text{ 個}/\text{nm}^2$ 以下であり、実質的にストラクチャー構造を形成していない真球状シリカ超微粉。シリカ及び／又はシリコン原料を電気炉で $2200^\circ\text{C}$ 以上に加熱し、生成したガスを急冷酸化した後、 $200^\circ\text{C}$ 以上の温度で回収する上記真球状シリカ超微粉の製造方法。上記真球状シリカ超微粉からなるシリコーンゴムの充填材。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 シリカ及び／又はシリコンからなる出発原料で得られたシリカ粉末であって、比表面積が $30\text{ m}^2/\text{g}$ 以上、 $5\text{ }\mu\text{m}$ 以上の粗大粒子が1%以下、カーボン不純物が $1000\text{ ppm}$ 以下、球形度が0.9以上、表面シラノール基が $3\text{ 個}/\text{nm}^2$ 以下であり、実質的にストラクチャー構造を形成していないものであることを特徴とする真球状シリカ超微粉。

【請求項2】 シリカ及び／又はシリコン原料を電気炉で $2200^\circ\text{C}$ 以上に加熱し、生成したガスを急冷酸化した後、 $200^\circ\text{C}$ 以上の温度で回収することを特徴とする請求項1記載の真球状シリカ超微粉の製造方法。

【請求項3】 請求項1記載の真球状シリカ超微粉からなることを特徴とするシリコーンゴム用充填材。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、各種樹脂充填材、特にシリコーンゴム充填材に好適な実質的にストラクチャーを形成していない真球状シリカ超微粉、その製造方法及び用途に関する。

## 【0002】

【従来の技術】シリカ超微粉は、樹脂やゴムの充填材として広く使われている。代表的なシリカ超微粉としては四塩化珪素の火炎熱分解法で得られるシリカ（四塩化珪素法シリカ）と珪酸ソーダを原料とする含水珪酸シリカ（珪酸ソーダ法シリカ）とがあり、増粘剤や補強剤として用いられている。このような作用は、数十～数百 $\text{m}^2/\text{g}$ を有する高い比表面積、ストラクチャー構造及び表面のシラノール基量に由来しており、特にストラクチャーの影響が大きい。

【0003】一方、増粘作用や補強作用の発現は、樹脂やゴム組成物としての流動性を抑制することになり、生産性や簡便性に優れた射出成形、ポッティング等の成形法では種々の問題を抱えることになる。例えば、液状シリコーンゴムに上記シリカ超微粉を数10%配合すると、粘度の大幅な上昇、クリープ硬化等を引き起こすだけでなく、経時的な増粘現象による安定性が問題となるので、これを解決するため、シリカの表面改質等が提案されている。

【0004】当初は、シリカ超微粉を高温加熱し、表面のシラノール基を排除する方法が試みられたが、加熱によってストラクチャーが発達し、また強い凝集塊が形成されることもあって、充填材として使用できる段階ではなかった。そこで、例えば、Lucasの米国特許第2938009号では環状シロキサンで処理する、Brownの米国特許第3024126号ではモノアルコキシシランと一級有機アミン化合物で処理する等の報告があるが、粘度の経時安定性までは十分に改善されていない。さらに、前述の問題を克服するため、より複雑な処理方法も提案されているが、結局、多大な労力と費用を

かけなければならぬ問題があった。

【0005】このような粘度の上昇ないしは経時安定性の問題はシリコーンゴムだけでなく、半導体封止材や樹脂基板に用いられる液状エポキシ樹脂でも同様に抱えており、従来のシリカ超微粉では適切でないで、現状は平均粒径で数ミクロン程度の溶融系球状シリカが用いられている。しかしながら、昨今の半導体材料は薄型化、軽量化に伴い、業界からはサブミクロン以下、数十 $\text{m}^2/\text{g}$ 以上の超微粉を使いこなそうという動きがあり、高い流動性を有ししかも経時安定性の高いシリカ超微粉が要求されている。

## 【0006】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、上記に鑑みてなされたものであり、その目的は、液状のゴムや樹脂の充填材として、特殊な表面処理操作を行わなくても、粘度上昇を抑えて高い流動性を維持しつつ、しかも粘度の経時安定性に優れた組成物を調製することのできるシリカ超微粉と、その製造方法を提供することにある。特に、液状のシリコーンゴムに好適なシリカ超微粉を提供することである。本発明の目的は、シリカ超微粉の粒子形態、比表面積及び表面シラノール基量を最適化することによって達成することができる。

## 【0007】

【課題を解決するための手段】すなわち、本発明は、シリカ及び／又はシリコンからなる出発原料で得られたシリカ粉末であって、比表面積が $30\text{ m}^2/\text{g}$ 以上、 $5\text{ }\mu\text{m}$ 以上の粗大粒子が1%以下、カーボン不純物が $1000\text{ ppm}$ 以下、球形度が0.9以上、表面シラノール基が $3\text{ 個}/\text{nm}^2$ 以下であり、実質的にストラクチャー構造を形成していない真球状シリカ超微粉である。また、本発明は、シリカ及び／又はシリコン原料を電気炉で $2200^\circ\text{C}$ 以上に加熱し、生成したガスを急冷酸化した後、 $200^\circ\text{C}$ 以上の温度で回収することを特徴とする上記本発明の真球状シリカ超微粉の製造方法である。さらに、本発明は、上記本発明の真球状シリカ超微粉からなるシリコーンゴム用充填材である。

## 【0008】

【発明の実施の形態】以下、更に詳しく本発明について説明する。

【0009】本発明は、原料にシリカ及び／又はシリコンを用いて得られたシリカ超微粉である。本発明のシリカ超微粉は比表面積が $30\text{ m}^2/\text{g}$ 以上であり、好ましくは $50\text{ m}^2/\text{g}$ 以上、さらに好ましくは $100\text{ m}^2/\text{g}$ 以上である。比表面積が $30\text{ m}^2/\text{g}$ 未満では、ゴム、樹脂への補強性が十分でなくなると共に、粘度が低い場合には充填材が沈降する問題も起こる。比表面積の上限は特にないが、混練性、ハンドリング性の点で $200\text{ m}^2/\text{g}$ 以下が好ましい。

【0010】 $5\text{ }\mu\text{m}$ 以上の粗大粒子の割合は1%（質量%、以下同じ）以下であり、好ましくは粒径分布測定に

において測定下限以下を保証することである。この理由は、前述のように、 $5\mu\text{m}$ もの粗大粒子があると沈降分離してしまう問題があると共に、樹脂成形体の表面粗さ等に悪影響を及ぼすからである。粗大粒子は小さければ小さいほどよく、より好ましくは $1\mu\text{m}$ 以上の割合が測定限界以下を保証することである。本発明において、粗大粒子は、レーザー回折光散乱法による粒径分布（例えば、コールター社レーザー回折光散乱法粒径分布装置「LS-230」）によって測定することができる。

【0011】本発明の真球状シリカ超微粉は、球形度が0.9以上の真球状シリカであって、実質的にストラクチャー構造を形成していないものである。ストラクチャーを形成して球形度が0.9未満になると、ゴム、樹脂の粘度が増加し、所望の成形が難しくなる。さらに、ストラクチャーが発達し、球形度が低下すると、規定の充填率ではもはや流動化が困難となり、充填率を下げないと成形すらできなくなる。また、ストラクチャーを形成していない場合でも球形度が0.9未満と低い場合には、やはり粘度上昇による流動性を阻害してしまい樹脂成形が困難になる。

【0012】本発明におけるストラクチャー形成の判断と球形度の測定は、TEM観察（透過型電子顕微鏡観察）による粒子形態評価とその写真の画像解析装置による解析によって行うことができる。TEM観察は、高度にサンプルを分散させ、所定の倍率（粒子の大きさに応じて10万倍～100万倍）で写真撮影を行い、ストラクチャーの形成観察と画像解析によって行われる。高度な分散方法としては、例えばアセトン溶媒に極微量の試料を超音波分散させ、その希薄溶液をメンブランフィルターで吸引ろ過して粉末を分散状態にして乾燥する。その後、フィルターに付着したままの粉末をTEM観察を行う。

【0013】球形度の測定は、TEM写真から確認される粒子像を画像解析装置によって取り込み、次のようにして計測する。すなわち、粒子像から粒子の投影面積（A）と周囲長（PM）を測定する。周囲長（PM）に対応する真円の面積を（B）とすると、その粒子の球形度は $A/B$ として表示できる。そこで、試料粒子の周囲長（PM）と同一の周囲長を持つ真円を想定すると $PM = 2\pi r$ 、 $B = \pi r^2$ であるから、 $B = \pi \times (PM/2\pi)^2$ となり、個々の粒子の球形度は、 $\text{球形度} = A/B = A \times 4\pi / (PM)^2$ として算出できる。これを任意に選ばれた20個以上の粒子について測定し、その平均値を球形度とする。本発明においては日本アビオニクス社製「SPICCA-II」を用いて行ったが、他社装置を用いても同様の数値が得られる。

【0014】本発明の真球状シリカ超微粉の表面シラノール基は3個/ $\text{nm}^2$ 以下であり、好ましくは1.5個/ $\text{nm}^2$ 以下である。表面シラノール基が3個/ $\text{nm}^2$ より多いと、ゴム、樹脂の粘度が増加すると共に、残存

したシラノール基が未硬化段階で貯蔵されたゴム、樹脂の粘度を経時的に増加させ、無視できなくなる。さらに、シラノール基の残存は、シラノール基量だけでなく、粉体構造の影響も大きく、ストラクチャー構造や細孔を有する粉体では、より残存しやすいくなる。

【0015】本発明における表面シラノール基の測定は、カールフッシャー水分測定装置で行い、 $200^\circ\text{C} \sim 900^\circ\text{C}$ で脱水された水分量で求めることができる。 $200^\circ\text{C}$ 未満では物理的に吸着された水分が主体で本質的に粘度を増加させるものではなく、 $900^\circ\text{C}$ 以上では実質的にシラノール基が存在していないからである。単位表面積当たりのシラノール基量： $\text{OH}$ （個/ $\text{nm}^2$ ）は次式で求めることができる。

$$\text{OH} = A \times 10^{-6} / 18 \times 6.02 \times 10^{23} / B \times 10^{-18} \times 2$$

A：水分量（ppm）

B：粉末の比表面積（ $\text{m}^2/\text{g}$ ）

【0016】本発明の真球状シリカ超微粉のカーボン不純物量は、1000ppm以下、好ましくは測定下限以下である。カーボン不純物は、ゴム、樹脂の粘度上昇抑制及びその経時安定性とあまり関係しないが、用途がシリコンゴムの充填材である場合、それによる着色を避けるため、上記値に限定した。

【0017】カーボン不純物は、予めサンプルを大気中、 $500^\circ\text{C}$ の温度で加熱して有機系カーボンを除去し、加熱後のサンプルを機器分析によって測定することによって行うことができる。機器分析装置としては、例えば高周波燃焼赤外吸収方式のLECO社製炭素硫黄同時分析装置（CS-444LS）が用いられる。

【0018】次に、本発明の真球状シリカ超微粉の製造方法について説明する。

【0019】本発明で使用される製造装置は、原料供給部、原料を電気炉で加熱してSiOガスが発生させる反応部、SiOガスを酸化冷却してシリカ超微粉とする析出部及び生成した真球状シリカ超微粉を捕集する捕集部から構成され、反応部と析出部は電気炉内で行われる。

【0020】本発明の製造方法は、シリカ及び／又はシリコンの原料を電気炉で $2200^\circ\text{C}$ 以上に加熱し、SiOガスを形成させ、次いでSiOガスが冷却され固体として析出する前に、急冷酸化してシリカ超微粉を形成させた後、 $200^\circ\text{C}$ 以上の温度で回収する。従来プロセスである四塩化珪素法や珪酸ソーダ法では、ストラクチャーが発達したり、シラノール基量が多かったりして、本発明の真球状シリカ超微粉を製造することができない。また、有機シラン化合物を原料としたゾル・ゲル法では、条件を選ぶことによって本発明のような比表面積と真球状の特性は得られるが、シラノール基量を本発明のレベルまで低減することができない。しかも、加水分解工程が必要であり、また高価な有機シラン化合物を用いなければならない。一方、炭化水素を燃料とする溶射法

においては、本発明のレベルまでにシラノール基量を低減するには捕集条件等の工夫が必要であり、しかも溶射による粗大粒子の生成の問題もある。

【0021】本発明において、シリカ及び／又はシリコンを原料にする理由は、上記のように、四塩化珪素、珪酸ソーダ、有機シラン化合物では水酸基を経由するためストラクチャーが発達したり、シラノール基量が多かったりして本発明の真球状シリカ超微粉を得ることができず、仮にできたとしても表面処理、加熱処理、分級等の様々な後処理を組み合わせた工業的に非効率なプロセスを取らなければならないためである。本発明で好ましい原料はシリカであり、特に好ましい原料はシリカとシリコンの混合原料である。

【0022】本発明の原料供給部においては、貯蔵された原料は、ベルトコンベア等の定量供給機によって定量的に電気炉内に投入される。本発明に用いられる原料は、シリカ及び／又はシリコンである。原料の形態は、数cmレベルの塊状、数mmレベルの粒状、数100 $\mu$ m以下の粉状のいずれでも良いが、10cm以上の塊状は生成量が減少し、100 $\mu$ m以下の粉状では飛散の問題があるので好ましくない。純度については、用途によっても限定されるが、99%以上であれば問題ない。

【0023】本発明で使用される電気炉としては、電気抵抗式加熱炉、高周波炉、アーク炉等、2200℃以上の昇温が可能であるものが用いられる。2200℃未満ではSiO<sub>2</sub>ガスの生成が十分でない。アーク炉は、2200℃以上の温度まで容易に高めることができ、しかも原料を直接加熱できるのでエネルギー効率が良く、周囲の炉材温度が比較的高温にさらされず、炉材の材質面でも有利である。電気抵抗式加熱炉の場合、2200℃以上で耐えうる炉材等の選定が難しく、また不純物としてのコンタミの問題もある。

【0024】アーク炉は、アーク放電と原料の通電加熱とを組み合わせる操作することが好ましい。具体的には、初期段階ではシリコンの比率を高め、アーク放電でシリコンを溶解させた湯を形成させる。次いで、シリカの比率を高めて、前述の湯の上部に高い抵抗を有するシリカ質の領域を形成させ、カーボン電極部と接することによって、安定した通電加熱と高温形成が可能となる。この場合、電力量にもよるが、通電部では3000℃程度まで温度を高められるため爆発的にSiO<sub>2</sub>ガスが発生する。この場合において、初期通電でシリコンを用い、アーク放電で原料を十分に加熱することができれば、その後の原料はシリカ又はシリコンの単独原料であってもよい。シリカの場合は、抵抗が大きいので少なくとも2000℃以上の高温にして抵抗を下げると共に、電気炉の電源を高抵抗型の高電圧仕様にし、またシリコンの場合は、逆に低抵抗型の高電流仕様にするのが望ましい。

【0025】本発明においては、抵抗が高いほど通電す

る原料温度を高めることができるので、シリカ原料の方が好ましい。シリコンの場合には、抵抗値が大きく変動しやすいので二次側の最大電流値を高く設計しておく必要がある。なお、初期通電材としてシリコンでなく、通電可能なカーボン粒を用いても構わないが、製品の品質に影響を与える可能性があるため、その場合は、初期段階の捕集粉は別取りする必要がある。

【0026】発生したSiO<sub>2</sub>ガスは、反応部から、例えばその上部に設けたガス流路を通して析出部に導き、急冷酸化してシリカ超微粉とする。析出部の位置は、SiO<sub>2</sub>ガスがSiO<sub>2</sub>の固体として析出しない温度領域であり、その領域にアルミナ等の耐熱性の配管で、空気、酸素ガス等の酸化性ガスを導き急冷酸化させる。酸化性ガス量は、SiO<sub>2</sub>発生量、析出部の温度に左右されるが、酸化性ガス量が多いほど急冷され、得られるシリカは比表面積が高く超微粉となる。また、酸化性ガスの吹き付け位置によっても比表面積を変化させることもできる。

【0027】析出部で生成した真球状シリカ超微粉は、捕集部で捕集する。捕集部は、捕集器と電気炉と捕集機を結ぶ配管及び捕集機へ導くための吸引ブロワーで構成されている。捕集機としては、特に制限はないが、操作性、コスト的に逆洗式のバグフィルターが好ましい。

【0028】本発明で重要なことは、捕集温度であり、少なくとも200℃以上が必要である。その理由は、水分が発生することが殆どない原料を用い、しかも燃料燃焼によって加熱を行わない本発明の製造方法においては、シラノール基が生成する要因はないが、吸引される空気に含まれる水蒸気量がシラノール基付与に大きく影響し、200℃未満の捕集温度では本発明のシラノール基量まで安定して低減させることは非常に困難となるからである。

【0029】

【実施例】以下、実施例、比較例をあげて更に具体的に本発明を説明する。

【0030】実施例1～5、比較例1～2

400kVAのトランス容量を持つジロー式アーク炉（二次タップ電圧80V、100V、120V、140V、限流リアクトル付、電極径200mm）を用い、シリカ超微粉を製造した。

【0031】用いた炉体は、炉内寸法が内径600mm、高さ1000mmであり、その周りをジルコニアレンガ、さらにその外周部を耐熱性レンガで構成されたものである。炉体に、高さ1000mmの円筒形の金属製水冷炉蓋を設け、さらにその上部より原料を投入した。原料投入装置は、原料ホッパーとホッパーに投原するベルトコンベアから構成されている。

【0032】投入された原料は加熱され、炉内にSiO<sub>2</sub>ガスが発生し、円筒形的水冷炉蓋上部の金属配管よりブロワーで吸引され、途中のバグフィルターで生成物が回収される。円筒形炉蓋に四方から挿入した内径50mm

のアルミナ管より空気を導入し、SiO<sub>2</sub>ガスを急冷酸化させてシリカ粉末を生成させる。生成物を回収するバグフィルターには、耐熱温度260℃の延伸多孔質のポリテトラフロロエチレン製ろ布を用い、バグフィルター手前に設けた冷却空気孔の導入量（二次エア量）によって捕集温度が調整される。

【0033】金属シリコン塊状品（30mm下塊状品、純度99%以上）80kgを炉内に投入し、アーク放電により溶解させた。次に、珪石粉碎品（約5mm、純度99%以上）と上記金属シリコン塊状品の等モル混合品を約10分毎に数kgずつ投入し、アーク放電から原料の通電加熱（抵抗型）へ徐々に移行し、6時間後に概ね二次電圧80V、二次電流3000A、電力量240kWhの安定した通電加熱を実施した。放射温度計で測定した炉内の温度は2500℃以上であることを確認した。

【0034】電極近傍の溶湯原料からSiO<sub>2</sub>ガスが発生し、炉内へアルミナ管より空気を導入し酸化冷却した。導入空気量と導入位置を制御することによって、生成物の比表面積、粒径を制御し、生成物はブローで吸引、バグフィルターで捕集した。捕集温度は、二次エア量で調整した。

【0035】得られたシリカ超微粉の捕集温度、比表面積、粒径分布より求めた5μm以上の粗大粒子の割合、

上記方法で測定された球形度、表面シラノール基量、カーボン量及びストラクチャー構造の発達の有無の結果を表1に示す。

#### 【0036】実施例6～7

初期溶解後の原料として、珪石粉碎原料と金属シリコン塊状品の等モル混合品から珪石粉碎原料の単独品（実施例6）又は金属シリコン塊状品の単独品（実施例7）に変更したこと以外は実施例1と同じ方法で生成物を製造した。それらの条件と結果を表1、表2に示す。なお、実施例6と実施例7の通電状態は、それぞれ二次電圧120V、二次電流2200A、電力量2640kWhと二次電圧50V、二次電流4000A、電力量2000kWhであった。

#### 【0037】比較例3～5

実施例2の粉体を大気中800℃の温度で2時間加熱して、球形度が本発明から逸脱した粉体を作製した（比較例3）。比較例2の粉体にアセチレンブラック粉末0.2%を外割添加し、カーボン量が本発明から逸脱した粉体を作製した（比較例4）。比較例5は、四塩化珪素法で合成された日本アエロジル社製アエロジル「#130」である。これらの特性を表1に示す。

#### 【0038】

【表1】

	捕集温度 (℃)	比表面積 (m <sup>2</sup> /g)	≥5μm (%)	球形度 (-)	表面シラノール基量 (個/nm <sup>2</sup> )	カーボン量 (ppm)	ストラクチャー の有無
実施例1	220	120	0	0.91	1.5	<100	無
実施例2	230	100	0	0.92	1.3	<100	無
実施例3	210	70	0	0.93	1.7	<100	無
実施例4	205	40	0	0.95	1.8	<100	無
実施例5	200	100	0	0.92	2.2	<100	無
実施例6	220	100	0	0.91	1.5	<100	無
実施例7	220	130	0	0.91	1.7	<100	無
比較例1	150	100	0	0.92	3.5	<100	無
比較例2	220	20	0	0.94	1.4	<100	無
比較例3	230	90	0	0.85	0.8	<100	有
比較例4	230	100	0	0.92	1.3	2000	無
比較例5	—	130	0	0.78	4.2	<100	有

比較例3：実施例2の粉体を大気中800℃で加熱

比較例4：実施例2の粉体にアセチレンブラック粉末0.2%を外割添加

比較例5：日本アエロジル社製「アエロジル#130」

【0039】次に、表1に示すシリカ超微粉について、液状シリコンゴムの充填材としての安定性を評価するため、次の試験を行った。

【0040】質量基準で、GE東芝シリコン社製の付加硬化型液状シリコンゴム：YE5822のA液80部に対し、シリカ超微粉を20部添加し、万能混練機で

2時間混練した。混練後の粘度と外観評価及び室温で30日間放置した後の粘度と均質性評価を行った。粘度の評価は、JIS K 7117に準じて行った。それらの結果を表2に示す。

#### 【0041】

【表2】

	混練直後		混練30日後	
	粘度 (Pa・s)	外観 (色)	粘度 (Pa・s)	均質性
実施例1	5.2	白色	5.4	○
実施例2	4.6	白色	4.7	○
実施例3	3.0	白色	3.0	○
実施例4	1.3	白色	1.3	○
実施例5	4.9	白色	5.5	○
実施例6	4.7	白色	4.8	○
実施例7	5.7	白色	5.9	○
比較例1	5.3	白色	8.1	○
比較例2	4	白色	3	△ <sup>*1</sup>
比較例3	9.0	白色	10.5	○
比較例4	4.5	灰色	4.5	○
比較例5	混練不良 <sup>**</sup>	—	—	—

\* 1 : ゴム組成物内で充填材が一部沈降分離した。

\* 2 : 均一混練ができなかった。

【0042】表2から明らかなように、本発明の真球状シリカ超微粉を液状シリコンゴムの充填材に用いた場合、粘度が低くしかも経時安定性に優れたゴム組成物が得られることがわかる。

【0043】

【発明の効果】本発明によれば、液状のゴムや樹脂の充

填材、特に液状シリコンゴムの充填材として、特殊な表面処理操作を行わなくても、粘度上昇を抑え、高い流動性を維持しつつ、粘度の経時安定性に優れた、真球状シリカ超微粉が提供される。本発明の真球状シリカ超微粉の製造方法によれば、本発明の真球状シリカ超微粉を容易に製造することができる。

---

フロントページの続き

Fターム(参考) 4G072 AA25 BB07 GG01 GG03 HH01  
HH14 RR03 RR21 TT02 TT05  
UU08  
4J002 CP031 DJ016 FA046 FD016